XP-002287240

P. 1-6

c:\epodata\sea\eplogf\external.log

AN - 2000:638398 HCAPLUS

DN - 133:244884

TI - Organic electroluminescent component

IN - Tsuge, Hodaka; Ishii, Satoshi; Shimada, Yoichi

PA - Honda Motor Co., Ltd., Japan

SO - Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 28 pp.

CODEN: JKXXAF

DT - Patent

LA - Japanese

FAN. CNT 1

PATENT NO. KIND DATE APPLICATION NO. DATE

PN - JP2000252072 A2 20000914 JP 1999-55905 19990303

PRAI- JP 1999-55905 19990303

OS - MARPAT 133:244884

GI

AB The invention refers to an org. electroluminescent component comprising I [R1-6 = H, hydrocarbon or oxy group, where at least one is not H; M = metal; 1 = valence of M] in the luminescent layer.

IT ***292631-29-9*** ***292631-30-2***

292631-32-3

292631-32-4

292631-33-5

I

292631-34-6

292631-35-7 ***292631-38-0*** ***292631-36-8***

292631~37-9

RL: DEV (Device component use); MOA (Modifier or additive use); USES (Uses)

(org. electroluminescent component)

RN 292631-29-9 HCAPLUS

CN Aluminum, tris(6-ethenyl-8-quinolinolato-.kappa.Nl,.kappa.O8)- (9CI) (CA INDEX NAME)

Page 1

02.07.2004 14:54:19

RN 292631-30-2 HCAPLUS

CN Aluminum, tris[6-(2-propenyl)-8-quinolinolato-.kappa.N1,.kappa.O8]- (9CI) (CA INDEX NAME)

RN 292631-31-3 HCAPLUS

CN Aluminum, tris[6-(1,2,3-butatrienyl)-8-quinolinolato-.kappa.N1,.kappa.O8]-(9CI) (CA INDEX NAME)

$$C H = C = C = C H_{2}$$

$$H_{2}C = C = C + C + C$$

$$C H = C = C = C + C$$

$$C H = C = C = C + C$$

RN 292631-32-4 HCAPLUS

CN Aluminum, tris[6-(2-butenyl)-8-quinolinolato-.kappa.N1,.kappa.O8]- (9CI) (CA INDEX NAME)

RN 292631-33-5 HCAPLUS

CN Aluminum, tris[6-(1,3-butadienyloxy)-8-quinolinolato-.kappa.N1,.kappa.O8](9CI) (CA INDEX NAME)

Page 3

RN 292631-34-6 HCAPLUS

CN Aluminum, tris[6-(1,3-butadienyl)-8-quinolinolato-.kappa.N1,.kappa.O8](9CI) (CA INDEX NAME)

RN 292631-35-7 HCAPLUS

CN Aluminum, tris[6-(ethenyloxy)-8-quinolinolato-.kappa.N1,.kappa.O8]- (9CI) (CA INDEX NAME)

Page 4

02.07.2004 14:54:20

RN 292631-36-8 HCAPLUS

CN Aluminum, tris[6-(2-propenyloxy)-8-quinolinolato-.kappa.N1,.kappa.O8](9CI) (CA INDEX NAME)

RN 292631-37-9 HCAPLUS

CN Aluminum, tris[6-(1,2,3-butatrienyloxy)-8-quinolinolato-.kappa.N1,.kappa.O8]- (9CI) (CA INDEX NAME)

RN 292631-38-0 HCAPLUS

CN Aluminum, tris[6-(2-butenyloxy)-8-quinolinolato-.kappa.N1,.kappa.O8](9CI) (CA INDEX NAME)

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2000-252072 (P2000-252072A)

(43)公開日 平成12年9月14日(2000.9.14)

(51) Int.Cl.7		識別記号		FΙ				7	7.]}*(参考)
H 0 5 B	33/14			H 0 5	5 B	33/14		В	3 K 0 0 7
C 0 9 K	11/06	660		C 0 9	ЭΚ	11/06		660	
		680						680	
		690						690	
H 0 5 B	33/10			H 0 5	5 B	33/10			
			審査請求	未請求	請习	R項の数25	OL	(全 28 頁)	最終頁に続く
			····						

(21)出願番号	特願平11-55905	(71)出願人	000005326
			本田技研工業株式会社
(22)出願日	平成11年3月3日(1999.3.3)		東京都港区南青山二丁目1番1号
		(72)発明者	柘植 穂高
			埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホン
			ダエンジニアリング株式会社内
		(72)発明者	石井 聡
			埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホン
			ダエンジニアリング株式会社内
		(74)代理人	100102864
			弁理士 工藤 実 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子とその製造方法

(57)【要約】

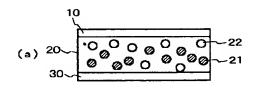
【課題】 電子輸送性発光剤としての性能に優れており、かつ湿式法を用いることが可能な化合物を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

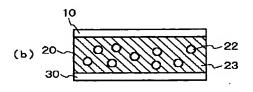
【解決手段】 陽極として作用する陽極層と、陰極として作用する陰極層と、陽極層と陰極層のうちの少なくとも一方は透明であり、陽極層と陰極層との間に設けられた、湿式法で作成され、正孔輸送性材料と一般式 【化1】

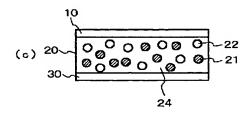


(R1~R6の各々は、-H, または-C

 $_{n}$ $H_{2\ m+1}$, または $-OC_{n}$ $H_{2\ m+1}$ のいずれかからなり、但し $R1\sim R6$ の少なくとも1つは-H以外からなり、また、n , mは0以上の整数で、n>=mであり、Mは金属原子であり、Lは金属原子Mの価数に対応する)で表される化合物とを含む発光層とからなる有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。







【特許請求の範囲】

【請求項1】 陽極として作用する陽極層と、

陰極として作用する陰極層と、ここで、前記陽極層と前 記陰極層のうちの少なくとも一方は透明であり、

前記陽極層と前記陰極層との間に設けられた、湿式法で作成され、正孔輸送性材料と一般式

【化1】

$$\begin{array}{c|cccc}
R1 & R2 \\
\hline
R2 & R3 \\
\hline
R6 & R5 & R4
\end{array}$$

(R1~R6の各々は、一H、または一C

 $_{n}$ $H_{2\,m+1}$,または $-OC_{n}$ $H_{2\,m+1}$ のいずれかからなり、但しR1~R6の少なくとも1つは-H以外からなり、また、n ,mはO以上の整数で、n>=mであり、Mは金属原子であり、Lは前記金属原子Mの価数に対応する)で表される化合物とを含む発光層と、

を具備することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 前記発光層は、バインダとしての高分子 化合物をさらに含むことを特徴とする請求項1に記載の 有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 前記発光層は、蛍光物質をさらに含むことを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 陽極として作用する陽極層と、

陰極として作用する陰極層と、ここで、前記陽極層と前 記陰極層のうちの少なくとも一方は透明であり、

前記陽極層の上部に設けられた、正孔輸送性材料からなる正孔輸送層と、

前記正孔輸送層と前記陰極層との間に設けられた、湿式 法で作成され、一般式 [化1]で表される化合物からな る電子輸送発光層と、

を具備することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 前記正孔輸送層と前記電子輸送発光層の 少なくとも1方は、バインダとしての高分子化合物をさ らに含む、

請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 前記正孔輸送層と前記電子輸送発光層の 少なくとも1方は、蛍光物質をさらに含む、

請求項4または5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】 前記 [化1] で表される化合物における前記金属原子Mが、Li, Na, K, Rbなどのアルカリ金属原子、Be, Mg, Caなどのアルカリ土類金属原子、B, Al, Gaなどの3B族原子、Eu, Yb,

Luなどの希土類原子、Zn. Cd原子のうち、いずれか1種類の原子からなり、

前記金属原子Mの価数しは、前記金属原子Mがアルカリ金属原子の時し=1、前記金属原子Mがアルカリ土類金属原子の時し=2、前記金属原子Mが3B族原子の時し=3、前記金属原子Mが希土類原子の時し=3、前記金属原子MがZn,Cd原子の時し=2であることを特徴とする請求項1から6のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項8】 前記一般式 [化1]で表される化合物は、前記中心原子Mがアルミニウム原子からなり、前記価数Lが3である請求項1から6のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項9】 前記正孔輸送性材料が、ポリ (Nービニルカルバゾール) からなる請求項1から8のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項10】 陽極として作用する陽極層を形成する 陽極形成ステップと、

正孔輸送性材料と一般式 [化1]で表される化合物を溶 媒に溶解または分散して得られた溶液を用いた湿式法に よって、前記陽極層上に発光層を形成する発光層形成ス テップと、

前記発光層上に、陰極として作用する陰極層を形成する 陰極形成ステップとからなり、

ここで、前記陽極層と前記陰極層の少なくとも1方が透明であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項11】 前記溶液は、バインダとしての高分子 化合物がさらに溶解されていることを特徴とする請求項 10に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造 方法。

【請求項12】 前記溶液は、蛍光物質がさらに溶解されていることを特徴とする請求項10または11に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項13】 前記溶媒は、水素結合が弱い化合物からなる請求項10から12のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項14】 前記溶媒は、炭化水素、ハロゲン化炭化水素、ニトロ化炭化水素、ニトリル類のうち少なくとも1つからなることを特徴とする請求項10から13のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項15】 前記溶媒は、炭化水素からなることを 特徴とする請求項10から14のいずれかに記載の有機 エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項16】 陽極として作用する陽極層を形成する 陽極形成ステップと、

正孔輸送性材料を、第1の溶媒に溶解または分散して得られた第1の溶液を用いた湿式法によって、前記陽極層上に正孔輸送層を形成する正孔輸送層形成ステップと、

一般式 [化1] で表される化合物を、第2の溶媒に溶解または分散して得られた第2の溶液を用いた湿式法によって、前記正孔輸送層上に電子輸送層を形成する電子輸送層形成ステップと、

前記電子輸送層上に、陰極として作用する陰極層を形成 する陰極形成ステップと、

ここで、前記陽極層と前記陰極層の少なくとも1方が透明であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項17】 前記第1の溶液と前記第2の溶液の少なくとも1方は、バインダーとしての高分子化合物がさらに溶解されていることを特徴とする請求項16に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項18】 前記第1の溶液と前記第2の溶液の少なくとも1方は、蛍光物質がさらに溶解されていることを特徴とする請求項16または17に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項19】 前記第2の溶媒は、常温における溶媒中への水の溶解度が2重量パーセント以下であることを特徴とする請求項16から18のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項20】 前記第1の溶媒または第2の溶媒の少なくとも1方は、水素結合が弱い化合物からなる請求項16から19のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項21】 前記第1の溶媒または第2の溶媒の少なくとも1方は、炭化水素、ハロゲン化炭化水素、ニトロ化炭化水素、ニトリル類のうち少なくとも1つからなることを特徴とする請求項16から20のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項22】 前記第1の溶媒または第2の溶媒の少なくとも1方は、炭化水素からなることを特徴とする請求項16から21のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項23】 前記 [化1]で表される化合物における前記金属原子Mが、Li、Na、K、Rbなどのアルカリ金属原子、Be、Mg、Caなどのアルカリ土類金属原子、B、A1、Gaなどの3B族金属原子、Eu、Yb、Luなどの希土類金属原子、Zn、Cd原子のうち、いずれか1種類の原子からなり、

前記金属原子Mの価数Lは、前記金属原子Mがアルカリ金属原子の時L=1、前記金属原子Mがアルカリ土類金属原子の時L=2、前記金属原子Mが3B族金属原子の時L=3、前記金属原子Mが希土類原子の時L=3、前記金属原子MがZn,Cd原子の時L=2であることを特徴とする、

請求項10から22のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項24】 前記一般式 [化1]で表される化合物は、前記中心原子Mが、アルミニウム原子からなり、前

記価数しが3である、

請求項10から23のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項25】 前記正孔輸送性材料が、ポリ(Nービニルカルバゾール)からなる、

請求項10から24のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に湿式法によって製造された高輝度の有機エレクトロルミネッセンス素子と、その有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法に関する。

[0002]

【従来の技術】現在種々の発光素子が使用されているが、面発光が可能で、大面積の発光素子の製造可能性から有機エレクトロルミネッセンス素子が注目されている

【 0 0 0 3 】 有機エレクトロルミネッセンス素子は、その特徴から、自動車、自転車等の方向指示機やテールランプなど、パーソナルコンピューター、ファミリーコンピューターなどのディスプレイ、液晶表示装置のバックライト、玩具用発光素子、道路工事用夜間表示灯などの用途に用いられることが予想される。

【 0 0 0 4 】 従来、有機エレクトロルミネッセンス素子では、陽極/発光層/陰極の構造の単層有機エレクトロルミネッセンス素子が知られている。陰極からは電子が発光層に注入され、陽極からは正孔が発光層に注入される。注入された電子と正孔が、発光層内で再結合するときに発光が行われる。

【0005】その後、種々の構造を持った有機エレクトロルミネッセンス素子が開発されている。例えば、陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極からなる多層積層構造である。正孔輸送層/発光層/電子輸送層は薄膜として形成されている。

【 0 0 0 6 】正孔輸送層は陽極から注入される正孔を発光層まで輸送するための層であり、電子輸送層は陰極から注入される電子を発光層まで輸送するための層である。発光層は正孔輸送層と陰極の間に設けられ、発光材として蛍光物質を含んでいる。発光層は高い発光量子効率を有する蛍光物質単体、あるいはこれらが低分子あるいは高分子化合物中に分散させられた形で形成されている。発光材は、色素レーザー用の色素、蛍光増白剤、あるいは紫外線照射により蛍光を示す蛍光物質の中から任意に用いることができる。

【0007】上記構造以外に、例えば正孔注入層、電子 注入層、正孔阻止層が設けられた有機エレクトロルミネ ッセンス素子も知られている。

【0008】例えば、特開平3-137186号公報に

は、陽極/正孔注入輸送層/発光層/正孔阻止層/陰極からなる多層積層構造の有機エレクトロルミネッセンス素子が開示されている。正孔阻止層は、発光層と陰極の間に設けられる。正孔阻止層が設けられない場合には、発光に寄与することがない正孔は発光層内を通過してゆく。正孔阻止層はそのような正孔を発光層内にとじ込め、発光に寄与させるために使用される。この結果、高い発光効率が得られる。

【0009】電子注入層は、発光層と陰極の間あるいは 正孔阻止層と陰極の間に設けられ、陰極からの電子の注 入を容易にする。正孔注入層は、発光層と陽極の間に設 けられ陽極からの正孔の注入を容易にする。

【0010】従来の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造において、各有機層は蒸着法により形成されていた。しかしながら、蒸着法で大面積の有機エレクトロルミネッセンス素子を生産することは生産効率の点で問題がある。

【0011】そこで、有機層が浸漬塗工法により形成される有機エレクトロルミネッセンス素子が特開平3-137186号公報に開示されている。また、特開平4-2096号公報には、有機層が塗布により形成されている。これにより、生産効率を改善できる可能性がでてきた。また、浸漬塗工法以外にも、キャスティング法、ブレードコート法、スピンコート法、スプレイコート法、ロール塗工法、インクジェット塗工法などの塗工法が、有機エレクトロルミネッセンス素子の形成に用いられている。このような塗工法を湿式法という。

[0012]

【発明が解決しようとする課題】有機層が湿式法により 形成されるためには、各有機層に含まれる正孔輸送性材 料や、電子輸送性材料などが湿式法に用いられる溶媒に 対して可溶性をもつことが必要である。

【0013】本発明では、電子輸送性発光剤としての性能に優れており、かつ湿式法を用いることが可能な化合物を用いた有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。また、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を提供する。

【0014】また、本発明の他の目的は、簡易な構造で 発光効率のよい有機エレクトロルミネッセンス素子を提 供することにある。

[0015]

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するために、発明者は、一般式[化1]で表される化合物が、有機エレクトロルミネッセンス素子に用いられる電子輸送性発光剤としての性質を有し、かつ、湿式法に用いられる溶媒に対して可溶性があることを発見した。

【0016】一般式 [化1] で表される化合物の具体例として、化学式

【化2】

[(£3)] OCH₃ O O O

OCH₃

【化4】

で表される化合物があげられるが、一般式 [化1]で表される化合物がこれらに限定されることはない。

【0017】また、上記課題を解決するために、陽極として作用する陽極層と、陰極として作用する陰極層と、ここで、陽極層と陰極層のうちの少なくとも一方は透明であり、陽極層と陰極層との間に設けられた、湿式法で作成され、正孔輸送性材料と一般式 [化1]で表される化合物とを含む発光層とを具備することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【0018】また、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層は、バインダとしての高分子化合物をさらに含むことが可能である。

【0019】また他に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層は、蛍光物質をさらに含むことが可能である。

【0020】他に、上記課題を解決するために、陽極として作用する陽極層と、陰極として作用する陰極層と、ここで、陽極層と陰極層のうちの少なくとも一方は透明であり、陽極層の上部に設けられた、正孔輸送性材料からなる正孔輸送層と、正孔輸送層と陰極層との間に設けられた、湿式法で作成され、一般式 [化1]で表される化合物からなる電子輸送発光層とを具備することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。【0021】また、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、正孔輸送層と電子輸送発光層の少なくとも1方は、バインダとしての高分子化合物をさらに含むことが可能である。

【0022】また他に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、正孔輸送層と電子輸送発光層の少なくとも1方は、蛍光物質をさらに含むことが可能である。

【0023】さらに、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、 [化1]で表される化合物における金属原子Mが、Li、Na、K、R bなどのアルカリ金属原子、Be、Mg、Caなどのアルカリ土類金属原子、B、AI、Gaなどの3 B族原子、Eu、Yb、Luなどの希土類原子、Zn、Cd原子のうち、いずれか1種類の原子からなり、金属原子Mの価数しは、金属原子Mがアルカリ金属原子の時L=1、金属原子Mが3 B族原子の時L=3、金属原子Mが名n、Cd原子の時L=2であることを特徴とすることが可能である。

【0024】さらにまた、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、一般式[化1]で表される化合物は、中心原子Mがアルミニウム原子からなり、価数しが3であることを特徴とすることが可能である。

【0025】さらに他に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、正孔輸送性材料が、ポリ(N-ビニルカルバゾール)からなることを特徴とすることが可能である。

【0026】また、上記課題を解決するために、陽極として作用する陽極層を形成する陽極形成ステップと、正孔輸送性材料と一般式[化1]で表される化合物を溶媒に溶解または分散して得られた溶液を用いた湿式法によって、陽極層上に発光層を形成する発光層形成ステップと、発光層上に、陰極として作用する陰極層を形成する陰極形成ステップとからなり、ここで、陽極層と陰極層の少なくとも1方が透明であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を提供する。

【0027】さらに、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、溶液は、バインダとしての高分子化合物がさらに溶解されていることを特徴とすることが可能である。

【0028】さらにまた、上記の有機エレクトロルミネ

ッセンス素子の製造方法において、溶液は、蛍光物質が さらに溶解されていることを特徴とすることが可能であ る。

【0029】他に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、溶媒は、水素結合が弱い化合物からなることを特徴とすることが可能である。

【0030】他にまた、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、溶媒は、炭化水素、ハロゲン化炭化水素、ニトロ化炭化水素、ニトリル類のうち少なくとも1つからなることを特徴とすることが可能である。

【0031】さらに他に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、溶媒は、炭化水素からなることを特徴とすることが可能である。

【0032】また、上記課題を解決するために、陽極として作用する陽極層を形成する陽極形成ステップと、正 孔輸送性材料を、第1の溶媒に溶解または分散して得られた第1の溶液を用いた湿式法によって、陽極層上に正 孔輸送層を形成する正孔輸送層形成ステップと、一般式 [化1]で表される化合物を、第2の溶媒に溶解または分散して得られた第2の溶液を用いた湿式法によって、正孔輸送層上に電子輸送層を形成する電子輸送層形成ステップと、電子輸送層上に、陰極として作用する陰極層を形成する陰極形成ステップと、ここで、陽極層と陰極層の少なくとも1方が透明であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を提供する。【0033】さらに、上記の有機エレクトロルミネッセ

【0033】さらに、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、第1の溶液と第2の溶液の少なくとも1方は、バインダーとしての高分子化合物がさらに溶解されていることを特徴とする請求項16に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【0034】さらにまた、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、第1の溶液と第2の溶液の少なくとも1方は、蛍光物質がさらに溶解されていることを特徴とすることが可能である。

【0035】さらに他に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、第2の溶媒は、常温における溶媒中への水の溶解度が2重量パーセント以下であることを特徴とすることが可能である。

【0036】さらに加えて、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、第1の溶媒または第2の溶媒の少なくとも1方は、水素結合が弱い化合物からなることを特徴とすることが可能である。

【0037】他に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、第1の溶媒または第2の溶媒の少なくとも1方は、炭化水素、ハロゲン化炭化水素、ニトロ化炭化水素、ニトリル類のうち少なくとも1つからなることを特徴とすることが可能である。

【0038】他にまた、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、第1の溶媒または第2

の溶媒の少なくとも1方は、炭化水素からなることを特徴とすることが可能である。

【0039】他に更に、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、[化1]で表される化合物における金属原子Mが、Li,Na,K,Rbなどのアルカリ金属原子、Be,Mg,Caなどのアルカリ土類金属原子、B,Al,Gaなどの3B族金属原子、Eu,Yb,Luなどの希土類金属原子、Zn,Cd原子のうち、いずれか1種類の原子からなり、金属原子Mがアルカリ金属原子の時し=1、金属原子Mがアルカリ土類金属原子の時し=2、金属原子Mが3B族金属原子の時し=3、金属原子Mが希土類原子の時し=3、金属原子Mが元れてCd原子の時し=2であることを特徴とすることが可能である。

【0040】他に加えて、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、一般式[化1]で表される化合物は、中心原子Mが、アルミニウム原子からなり、価数Lが3であることを特徴とすることが可能である。

【 0 0 4 1 】さて、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、正孔輸送性材料が、ポリ (N - ビニルカルバゾール) からなることを特徴とすることが可能である。

[0042]

【発明の実施の形態】以下に、添付図面を参照して、本 発明による有機エレクトロルミネッセンス素子について 詳細に説明する。

【0043】図1(a)、(b)、(c)は、本発明における有機エレクトロルミネッセンス素子の第1の実施形態を示す。

【0044】図1(a)、(b)、(c)によると、本発明における有機エレクトロルミネッセンス素子の第1の実施形態の構成は、陽極30と、発光層20と、陰極10からなり、陽極30と陰極10との間に発光層20が設けられている。

【0045】図1(a)に示される有機エレクトロルミネッセンス素子は、発光層20に正孔輸送剤21と電子輸送性発光剤22とを含む。

【0046】また、図1(b)に示される有機エレクトロルミネッセンス素子のように、発光層20に正孔輸送性高分子23と電子輸送性発光剤22とを含む構成も可能である。

【0047】また、図1(c)に示される有機エレクトロルミネッセンス素子のように、発光層20に正孔輸送剤21と電子輸送性発光剤22とバインダ高分子24とを含む構成も可能である。

【0048】陽極30としては、透明絶縁性支持体、例 えばガラス基板上に形成された透明な導電性物質が用い られる。

【0049】陽極30の材料としては、酸化錫、酸化イ

ンジウム、酸化鍋インジウム (ITO) などの導電性酸化物、あるいは金、銀、クロムなどの金属、よう化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性ポリマーなどを挙げることができる。

【0050】陰極10が透明な材料で形成されている場合には、陽極30は不透明な材料で形成されてもよい。但し、陽極として導電性ポリマーが使用されるときは、以下に示す湿式法による発光層20の形成時に、その導電性ポリマーが湿式法に用いられる溶媒中に溶出しないことが必要である。

【0051】発光層20は、正孔輸送剤21または正孔輸送性高分子23と、電子輸送性発光剤22を含む。また、発光層20内にドーピング発光材料としての蛍光物質を分散させることが可能である。また、図1(c)に示すように、発光層20内にバインダ高分子24を含むことも可能である。

【0052】電子輸送性発光剤22は、[化1]の一般式で表される化合物からなる。(化学式 [化1]中の、R1~R6の各々は、-H, または $-C_nH_{2m+1}$, または $-OC_nH_{2m+1}$ のいずれかからなり、但しR1~R6の少なくとも1つは-H以外からなり、また、n, mは0以上の整数で、n>=mであり、Mは金属原子であり、Lは金属原子Mの価数に対応し、特にMはLi, Na, K, Rbなどのアルカリ金属元素、Be, Mg, Caなどのアルカリ土類金属元素、B, A1, Gaなどの3B族金属元素、Eu, Yb, Luなどの希土類金属元素、Zn, Cd元素であって、Mがアルカリ金属元素の時L=1、Mがアルカリ土類金属元素の時L=2、Mが3B族金属元素の時L=3、MがZn, Cd元素の時L=2である)

【0053】また、[化1]の一般式で表される化合物の $R1\sim R6$ は、素子の抵抗に寄与し、 $R1\sim R6$ に含まれる炭素原子数が多いほど素子の抵抗値が上昇するため、その $R1\sim R6$ に含まれる炭素原子数の合計は少ない方が望ましい。

【0054】特に、[化1]の一般式で表される化合物において、R1~R6に含まれる炭素原子数の合計が20以下であることが望ましい。

【0055】正孔輸送剤21または正孔輸送性高分子2 3は、正孔輸送性有機物からなる。正孔輸送性有機物 は、正孔輸送性低分子または正孔輸送性高分子が用いら れる。

【0056】正孔輸送性低分子21として、化学式 【化5】

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ \hline \\ N - & & \\ \hline \\ CH_3 & & CH_3 \\ \end{array}$$

に示すN, N' ージフェニルーN, N' ービス(3 ーメ チルフェニル) ー 1 , 1' ービフェニルー4 , 4' ージ アミン、(以下TPDともいう)

【化6】

に示す4, 4' -ビス(9-カルバゾリル)ビフェニル、

【化7】

に示すN, N'ージフェニルーN, N'ービス (1ーナフチル) ー1, 1'ービフェニルー4, 4'ージアミン、

【化8】

に示す4, 4'ービス (10-フェノチアジニル) ビフェニル、

【化9】

に示すカッパーフタロシアニン、 【化10】

に示すTPAC、

【化11】

$$\begin{array}{c|c} H_3C & & \\ \hline \\ H_3C & & \\ \hline \\ \hline \\ \end{array} \begin{array}{c} CH_3 \\ \hline \\ \end{array} \begin{array}{c} CH_3 \\ \hline \\ \end{array}$$

に示すPDA、 【化12】

に示すm MTDATA、および上記の各化合物の誘導 体等からなることが好ましい。

【0057】正孔輸送性高分子23として、

【化13】

に示すポリ(Nービニルカルバゾール)(以下PVKともいう)、ポリビニルナフタレン、ポリビニルアントラセン、ポリビニルフェナントレン、ポリビニルピレン、ポリビニルペリレンなどの正孔輸送性高分子からなることが好ましい。

【0058】あるいは、正孔輸送性高分子23として、 ポリ(パラフェニレン)及びその誘導体、

【化14】

に示すポリ (パラーフェニレンビニレン) 及びその誘導体などの導電性高分子発光体、または 【化15】

$$\begin{array}{c|c}
 & CH_2 - C \\
 & CH_2 - C \\
 & CH_3
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
 & CH_3
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
 & CH_3
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
 & CH_3
\end{array}$$

化学式 [化15]で示される化合物及びその誘導体、 【化16】

化学式 [化16]で示される化合物及びその誘導体、 【化17】

化学式 [化17]で示される化合物及びその誘導体、 【化18】

$$\begin{array}{c}
\begin{pmatrix}
R \\
P = N
\end{pmatrix}
\\
R \\
R \\
R \\
CH_3
\end{array}$$

化学式 「化18]で示される化合物及びその誘導体、

$$(-0)$$

化学式 [化19]で示される化合物及びその誘導体、

化学式 [化20]で示される化合物及びその誘導体、

$$\left(\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ \hline & \\ \hline & \\ \hline & & \\ \hline & \\ \hline$$

化学式 [化21]で示される化合物及びその誘導体、

化学式[化22]で示される化合物及びその誘導体、

化学式 [化23]で示される化合物及びその誘導体、などの導電性高分子発光体からなることが好ましい。 【0059】蛍光物質は、クマリン1、クマリン2、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン102、クマリン106、クマリン334、クマリン337、クマリン4、クマリン314、クマリン153、クマリン338、クマリン307、クマリン138、クマリン338、クマリン50、クマリン138、クマリン152、クマリン151、クマリン339、3(2-ベンゾチアゾリル)-7-(ジブチルアミノ)クマリン、3-(2-ベンゾチアゾリル)-7-(ジヘプチルアミノ)クマリン、3-(2-ベンゾチアゾリル)-7-(ジオクチルアミノ)クマリン、<math>10-(2-ベンゾチアゾリル)-2, 3, 6, 7-テトラヒドロ-1, 1, 7, 7-テトラメチル1H, 5H, 11H-[1]ベンゾピラノ[6, 7, 8-ij]クマリン-11-ワンなどクマリン誘導体、【化24】

に示す(2-(2-(4-(ジメチルアミノ))フェニル)エテニル)-6-メチル-4H-ピラン-4-4リデネ)プロパンジニトリル(以下DCMともいう)、(<math>2-(2-(4-(ジプロピルアミノ))フェニル)エテニル)-6-メチル-4H-ピラン-4-4リデネ)プロパンジニトリル、(<math>2-(2-(4-(ジブチルアミノ))フェニル)エテニル)-6-メチル-4H-ピラン-4-4リデネ)プロパンジニトリル、(<math>2-(2-(4-(ジオクチルアミノ))フェニル)エテニル)-6-メチル-4H-ピラン-4-4リデネ)プロパンジニトリル、

$$\begin{array}{c|c} \text{CN} & \text{CN} \\ \hline \\ \text{CN} & \text{CN} \\ \hline \\ \text{O}_2 \\ \hline \\ \text{O}_2 \\ \hline \\ \text{O}_2 \\ \hline \\ \text{O}_2 \\ \\ \text{H}_5 \\ \end{array}$$

【化26】

化学式 [化25], [化26], [化27]で示される 化合物などのDCM系化合物、 【化28】

【化29】

化学式 [化28], [化29]で示される化合物、ナイルレッドなどの色素類、5.6,11,12ーテトラフェニルナフタセン(以下ルブレンともいう)、キナクリドン、アントラセン、アミン系などの芳香族アミン、芳香族イミンの誘導体、

【化30】

に示す1、1、4、4ーテトラフェニルー1、3ーブタ ジエン(以下TPBともいう)、1-(9-アントラセ ニル) -4-フェニル-1、3-ブタジエン、1-(4 -キノリル)-4-(P-ジメチルアミノ)フェニルー 1、3-ブタジエンなどのブタジエン誘導体、アクリジ ンの誘導体、4、41ービス(5ーメチルー2ーベンゾ オキサゾリル) スチルベンなどのスチルベンの誘導体、 1.3-イソベンゾフランなどのイソベンゾフランの誘 導体、1,3-ジピレニルプロパンなどのエキサイマー あるいはエキサイプレックス発光を示す化合物、7-(p-メトキシベンジルアミノ)-4-ニトロベンゾオ キサジアゾールなどのベンゾオキサジアゾール誘導体、 オキサゾール、オキサジアゾール、ベンゾイミダゾー ル、チアゾール誘導体などの蛍光増白剤、8-ヒドロキ シキノリンおよびその誘導体の金属錯体、ルテニウム錯 体、希土類錯体、ベンゾイルトリフルオロアセトン、フ ロイルトリフルオロアセトン、ヘキサフルオロアセトン のユーロビウム錯体に代表されるような蛍光性の金属錯 体、希土類錯体、あるいはピコリン酸テルビウムなどの 希土類塩などをあげることができる。

【0060】また、図1(c)で用いられるバインダ高分子24の例として、ポリスチレン、ポリビニルアントラ エル、ポリビニルフェナントレン、ポリビニルアントラセン、ポリビニルペリレン、ポリ(エチレンーcoービニルアセテート)、ポリブタジエンのcisとtrans、ポリ(2ービニルナフタレン)、ポリビニルピロリドン、ポリスチレン、ポリ(メチルメタクリレート)、ポリ(ビニルアセテート)、ポリ(2ービニルピリジンーcoースチレン)、ポリアセナフチレン、ポリ(アクリロニトリルーcoーブタジエン)、ポリ(ベンジルメタクリレート)、ポリ(ビニルトルエン)、ポリ(スチレンーcoーアクリロニトリル)、ポリ(4ービニルビフェニル)、ポリエチレングリコールなどが挙げられる。

【0061】陰極10は、発光層20上に設けられる。 陽極30が透明な材料で形成されている場合には、陰極 10は不透明な材料で形成されてもよいが、陽極30が 不透明な材料で形成されている場合には、陰極10は透 明な材料で形成される必要がある。

【0062】陰極10として好ましいのは、例えばインジウム、銀、金、銅、錫、アルミニウム、鉛、マグネシウム、リチウム、ランタン、ユーロピウム、イッテルビウムなどの金属や希土類単体、フッ化リチウムあるいはこれらを複合して形成した半透明または不透明電極が挙げられる

【0063】次に、本発明の第1の実施形態における有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法について説明する。

【0064】まず、基板となる透明絶縁性支持体、例えばガラス基板上に陽極30を蒸着法などにより形成する。

【0065】次に、[化1]の一般式で表される化合物と、上記に示される正孔輸送剤とが溶媒中に溶解または分散された溶液を作成する。その溶液を用いた湿式法に

よって、陽極30上に発光層20を形成する。この時、 用いられた溶媒は自然乾燥によって蒸発することにより、発光層20が形成される。この時、加熱、紫外線の 照射による重合、硬化等の処理は行う必要がない。従って、製造工程が簡単であり、生産効率を向上させること ができる。

【0066】また、上記の溶液に、さらに上記に示されるバインダ高分子を溶解または分散して得られた溶液を用いた湿式法によって、陽極30上に発光層20を形成することも可能である。

【0067】本発明で使用される湿式法には、たとえばキャスティング法、ブレードコート法、浸漬塗工法、スピンコート法、スプレイコート法、ロール塗工法、インクジェット塗工法などの通常の塗工法が含まれる。

【0068】最後に、発光層20上に、蒸着法などにより陰極10を形成する。

【0069】上記の有機エレクトロルミネッセンス素子 の製造方法において、発光層20の形成に使用される溶 媒は、一般の有機溶媒であって、正孔輸送剤と[化1] の一般式で表される化合物とを溶解または分散可能なも のであれば良い。また、その溶媒は、バインダ高分子を さらに溶解または分散可能なものであれば良い。その使 用される溶媒の例として、以下に示す溶媒を単独または 2種類以上混合したものが挙げられる。その溶媒とし て、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール 等のアルコール類、アセトン、メチルエチルケトン等の ケトン類、N. Nジメチルホルムアルデヒド、N. Nジ メチルアセトアルデヒド、Nメチルピロリジノン等のア ミド類、テトラヒドロフラン、ジオキ酸、エチレングリ コールモノメチルエーテル等のエーテル類、nメチルア ミン、ビジジン、キノリン、アニリン等のアミン類、m -クレゾール、 α -クロロナフタレン、2, 2 -ジメチ ルブタン、2,4-ジメチルペンタン、2-メチルヘキ サン、3-メチルヘキサン、2、2、4-トリメチルペ ンタン、2-メチルブタン、2,2、5-トリメチルへ キサン、1、1、2-トリクロロ-1、2、2-トリフ ルオロエタン、1 ーペンテン、2, 2, 3-トリメチル ペンタン、2-メチルペンタン、n-ペンタン、tra ns-2-ペンテン、1-ヘキセン、cis-2-ペン テン、2-クロロー2-メチルプロパン、1,1,2, 2-テトラクロロー1,2-ジフルオロエタン、1-ヘ プテン、ヘキサン、n-オクタン、1-オクテン、ヘブ タン、n-ノナン、1-ノネン、n-デカン、1-クロ ロペンタン、1ーデセン、2ークロロブタン、ベンゾト リフルオリド、メチルシクロヘキサン、メチルシクロペ ンタン、2-クロロプロパン、メシチレン、1-クロロ ブタン、エチルシクロヘキサン、p-キシレン、m-キ シレン、2ープロモプロパン、シクロヘキセン、シクロ ペンタン、1-2ロロプロパン、シクロヘキサン、2、 3-ジメチルブタン、o-キシレン、テトラクロロメタ

ン、ヘキサフルオロベンゼン、ペンタクロロエタン、1 -クロロ-2-メチルプロパン、1,1-ジクロロエチ レン、1, 1, 1, 2 - テトラクロロエタン、1, 1, 11ートリクロロエタン、1ーブロモプロパン、クメン、 p-クロロトルエン、ジエチルスルファイド、o-クロ ロトルエン、pージクロロベンゼン、1,1ージクロロ エタン、テトラクロロエチレン、mージクロロベンゼ ン、pージエチルベンゼン、mージエチルベンゼン、エ チルベンゼン、トリクロロエチレン、3-クロロプロペ ン、oージエチルベンゼン、oージクロロベンゼン、ブ ロモエタン、トルエン、クロロベンゼン、トリクロロメ タン、フルオロベンゼン、1,2-ジクロロエチレン (trans)、1, 1, 2, 2-テトラクロロエタ ン、1.2-ジクロロプロパン、ベンゼン、1,2.3ートリクロロプロパン、スチレン、イソブチロニトリ ル、1, 2-ジクロロエチレン (cis)、1-ブロモ -2-クロロエタン、1.2-ジクロロエタン、ヘキサ クロロエチレン、1,2-ジブロモエタン、1,1,2 ートリクロロエタン、ジクロロメタン、バレロニトリ ル、チオフェン、カーボンジスルファイド、クロロブロ モメタン、ブロモベンゼン、2-ニトロプロパン、1-ニトロプロパン、ベンゾニトリル、ニトロエタン等及 び、これらの混合溶媒が挙げられる。

【0070】また、溶媒中に水が溶解した溶媒を使用して、湿式法により発光層20を成膜した時に、溶液中の水分が発光層20自体に残留し、発光層20自体の発光特性を劣化させる。このような劣化による影響を減少または無くし、発光層20の耐久性を向上させるためには、湿式法に使用する溶媒について、室温(常温)における溶媒中への水の溶解度が、ある一定割合よりも少ないものを用いることが望ましい。特に、その溶媒中への水の溶解度が2重量パーセント以下である溶媒を使用することが望ましい。また、その溶媒中への水の溶解度が、1重量パーセント以下である溶媒を使用することがより好ましい。

【0071】このような溶媒の例としては、 α -クロロナフタレン、2、2ージメチルブタン、2、4ージメチルペンタン、2ーメチルへキサン、3ーメチルへキサン、2、4ードリメチルペンタン、2ーメチルブタン、2・メチルブタン、1・1・2ートリクロロー1・2・2ートリフルオロエタン、1ーペンテン、2・2・3ートリメチルペンタン、2ーメチルペンタン、1ーペンテン、2・3ートリメチルペンタン、2ーメチルペンタン、1ーペンテン、2ークロロー2ーメチルプロパン、1・1・2・2ーテトラクロロー1・2ージフルオロエタン、1ーペプテン、ヘキサン、1ーオクタン、1ーオクテン、ヘプタン、1ーナン、1ーノネン、1ーブウン、ベンゾトリフルオリド、メチルシクロペキサン、メチルシクロペンタン、2ークロロプタン、メチルシクロペンタン、2ークロロプ

ロパン、メシチレン、1-クロロブタン、エチルシクロ ヘキサン、pーキシレン、mーキシレン、2ーブロモプ ロパン、シクロヘキセン、シクロペンタン、1ークロロ プロパン、シクロヘキサン、2,3-ジメチルブタン、 0-キシレン、テトラクロロメタン、ヘキサフルオロベ ンゼン、ペンタクロロエタン、1-クロロ-2-メチル プロバン、1,1-ジクロロエチレン、1,1,1,2 ーテトラクロロエタン、1,1,1ートリクロロエタ ン、1-ブロモプロパン、クメン、p-クロロトルエ ン、ジエチルスルファイド、o-クロロトルエン、p-ジクロロベンゼン、1,1-ジクロロエタン、テトラク ロロエチレン、mージクロロベンゼン、pージエチルベ ンゼン、mージエチルベンゼン、エチルベンゼン、トリ クロロエチレン、3ークロロプロペン、oージエチルベ ンゼン、ロージクロロベンゼン、ブロモエタン、トルエ ン、クロロベンゼン、トリクロロメタン、フルオロベン ゼン、1, 2-ジクロロエチレン(trans)、1,1, 2, 2-テトラクロロエタン、1, 2-ジクロロプ ロパン、ベンゼン、1,2,3-トリクロロプロパン、 スチレン、イソブチロニトリル、1,2-ジクロロエチ レン(cis)、1-プロモー2-クロロエタン、1、 2-ジクロロエタン、ヘキサクロロエチレン、1.2-ジブロモエタン、1,1,2-トリクロロエタン、ジク ロロメタン、バレロニトリル、チオフェン、カーボンジ スルファイド、クロロブロモメタン、ブロモベンゼン、 2-ニトロプロパン、1-ニトロプロパン、ベンゾニト リル、ニトロエタン等及び、これらの混合溶媒が挙げら

【0072】また、水素結合の強い溶媒を使用して、溶 液を長時間放置すると、材料が変質することがある。材 料の変質を防止するために、炭化水素、ハロゲン化炭化 水素、ニトロ化炭化水素、ニトリル類などの溶媒自体の 水素結合が比較的弱い溶媒を用いることが望ましい。そ のような溶媒の例としては、αークロロナフタレン、 2, 2-ジメチルブタン、2, 4-ジメチルペンタン、 $2-x+u\wedge + \psi \times 3-x+u\wedge + \psi \times 2$, 2, 4 ートリメチルペンタン、2ーメチルブタン、2,2、5 ートリメチルヘキサン、1,1,2ートリクロロー1, 2, 2-トリフルオロエタン、1-ペンテン、2, 2, 3-トリメチルペンタン、2-メチルペンタン、n-ペ ンタン、trans-2-ペンテン、1-ヘキセン、c is-2-ペンテン、2-クロロ-2-メチルプロパ ン、1、1、2、2ーテトラクロロー1、2ージフルオ ロエタン、1-ヘプテン、ヘキサン、n-オクタン、1 ーオクテン、ヘプタン、nーノナン、1ーノネン、nー デカン、1-クロロペンタン、1-デセン、2-クロロ ブタン、ベンゾトリフルオリド、メチルシクロヘキサ ン、メチルシクロペンタン、2-クロロプロパン、メシ チレン、1-クロロブタン、エチルシクロヘキサン、p ーキシレン、mーキシレン、2ーブロモプロパン、シク

ロヘキセン、シクロペンタン、1-クロロプロパン、シ クロヘキサン、2,3ージメチルブタン、oーキシレ ン、テトラクロロメタン、ヘキサフルオロベンゼン、ペ ンタクロロエタン、1-クロロー2-メチルプロパン、 1,1-ジクロロエチレン、1,1,1,2-テトラク ロロエタン、1,1、1-トリクロロエタン、1-ブロ モプロパン、クメン、p-クロロトルエン、ジエチルス ルファイド、oークロロトルエン、pージクロロベンゼ ン、1,1-ジクロロエタン、テトラクロロエチレン、 mージクロロベンゼン、pージエチルベンゼン、mージ エチルベンゼン、エチルベンゼン、トリクロロエチレ ン、3-クロロプロペン、o-ジエチルベンゼン、o-ジクロロベンゼン、ブロモエタン、トルエン、クロロベ ンゼン、トリクロロメタン、フルオロベンゼン、1,2 - \vec{v} ρ \vec{u} \vec{u} \vec{v} \vec{v} テトラクロロエタン、1.2-ジクロロプロパン、ベン ゼン、1,2,3-トリクロロプロパン、スチレン、イ ソブチロニトリル、1,2-ジクロロエチレン(ci ロエタン、ヘキサクロロエチレン、1,2-ジブロモエ タン、1,1,2ートリクロロエタン、ジクロロメタ ン、バレロニトリル、チオフェン、カーボンジスルファ イド、クロロブロモメタン、ブロモベンゼン、2-二ト ロプロパン、1-ニトロプロパン、ベンゾニトリル、ニ トロエタン等及び、これらの混合溶媒が挙げられる。

【0073】特に、素子の耐久性を向上させ、材料を変 質させない溶媒として、炭化水素の溶媒を用いることが 望ましい。そのような炭化水素の溶媒としては、2、2 ージメチルブタン、2,4ージメチルペンタン、2ーメ チルヘキサン、3-メチルヘキサン、2,2,4-トリ メチルペンタン、2-メチルブタン、2,2、5-トリ メチルヘキサン、1,1,2-トリクロロー1,2,2 ートリフルオロエダン、1ーペンテン、2,2,3ート リメチルペンタン、2-メチルペンタン、n-ペンタ ン、trans-2-ペンテン、1-ヘキセン、cis -2-ペンテン、1-ヘプテン、ヘキサン、n-オクタ ン、1-オクテン、ヘプタン、n-ノナン、1-ノネ ン、nーデカン、1ーデセン、メチルシクロヘキサン、 メチルシクロペンタン、メシチレン、エチルシクロヘキ サン、pーキシレン、mーキシレン、シクロヘキセン、 シクロペンタン、シクロヘキサン、2,3-ジメチルブ タン、o-キシレン、クメン、p-ジエチルベンゼン、 mージエチルベンゼン、エチルベンゼン、oージエチル ベンゼン、トルエン、ベンゼン、スチレン及び、これら の混合溶媒が挙げられる。

【0074】次に、本発明の第2の実施形態を以下に示す。

【0075】図2(a)、(b)、(c)、(d)は、本発明における有機エレクトロルミネッセンス素子の第2の実施形態を示す。

【0076】図2(a)、(b)、(c)、(d)によると、本発明における有機エレクトロルミネッセンス素子の第2の実施形態の構成は、陽極70と、正孔輸送層60と、電子輸送発光層50と、陰極40からなる。

【0077】図2(a)に示される有機エレクトロルミネッセンス素子は、正孔輸送層60に正孔輸送剤61を含み、電子輸送発光層50に電子輸送性発光剤51を含む。

【0078】また、図2(b)に示される有機エレクトロルミネッセンス素子のように、正孔輸送層60に正孔輸送性高分子62を含み、電子輸送発光層50に電子輸送性発光剤51を含む構成も可能である。

【0079】また、図2(c)に示される有機エレクトロルミネッセンス素子のように、正孔輸送層60に正孔輸送剤61とバインダ高分子63とを含み、電子輸送発光層50に電子輸送性発光剤51とバインダ高分子52とを含む構成も可能である。

【0080】また、図2(d)に示される有機エレクトロルミネッセンス素子のように、正孔輸送層60に正孔輸送性高分子62とバインダ高分子63とを含み、電子輸送発光層50と電子輸送性発光剤51とバインダ高分子52とを含む構成も可能である。

【0081】ここで、陽極70と、正孔輸送剤61、正 孔輸送性高分子62と、電子輸送剤51と、バインダ高 分子52と、陰極40で用いられている材料は、本発明 の第1の実施形態において用いられるものと同じであ る。

【0082】また、正孔輸送層60または/かつ電子輸送発光層50内にドーピング発光材料としての蛍光物質を分散させることが可能であり、この蛍光物質も本発明の第1の実施形態において用いられるものと同じである。

【0083】次に、本発明の第2の実施形態における有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法について説明する。

【0084】まず、基板となる透明絶縁性支持体、例えばガラス基板上に陽極70を蒸着法にて形成する。

【0085】次に、正孔輸送性高分子または正孔輸送性低分子を第1の溶媒中に溶解または分散した第1の溶液を作成する。ここで、第1の溶液に、さらにバインダ高分子を溶解または分散することも可能である。また、第1の溶液に、さらに蛍光物質を溶解または分散することも可能である。次に、その第1の溶液を用いた湿式法によって、陽極70上に正孔輸送層60を形成する。

【0086】次に、[化1]の一般式で表される化合物を第2の溶媒中に溶解または分散した第2の溶液を作成する。ここで、第2の溶液に、さらにバインダ高分子を溶解または分散することも可能である。また、第2の溶液に、さらに蛍光物質を溶解または分散することも可能である。その第2の溶液を用いた湿式法によって、正孔

輸送層60上に電子輸送発光層50を形成する。

【0087】この時、用いられた溶媒は自然乾燥によって蒸発することにより、正孔輸送層60と電子輸送発光層50が形成される。加熱、紫外線の照射による重合、硬化等の処理は行う必要がない。従って、製造工程が簡単であり、生産効率を向上させることができる。

【0088】本発明で使用される湿式法には、たとえばキャスティング法、ブレードコート法、浸漬塗工法、スピンコート法、スプレイコート法、ロール塗工法、インクジェット塗工法などの通常の塗工法が含まれる。最後に、電子輸送発光層50上に、蒸着法などを用いて陰極40を形成し、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子が得られる。

【0089】ここで、電子輸送発光層50の形成に用いられる第2の溶媒には、本発明の第1の実施形態において用いられたものと同じものが用いられる他に、正孔輸送層60中に含まれる有機物が第2の溶媒に溶出しないものが望ましい。

【0090】このことは、第2の溶媒が電子輸送発光層50の成膜温度における、正孔輸送層60中に含まれる有機物の溶解度パラメタの可溶範囲外にある溶解度パラメタを有する溶媒であることが望ましい。これは、電子輸送発光層50の成膜時に、正孔輸送層60に含まれる有機物に対する第2の溶媒中への溶出がないことにより、両層間の界面が粗くならないためである。

【0091】ここで、溶解度パラメタは、以下の式で表される。

 $SP = \{ (\Delta H - RT) / V \} 1/2$

ここで、S P は溶解度パラメタ (単位: cal/cm³)^{1/2}であり、Δ H は蒸発熱 (単位: cal/mol)であり、R は気体定数 (単位: cal/(mol·K))であり、T は絶対温度 (単位: K)であり、Vはモル体積 (単位: cm²/mol)である。

【0092】特に、正孔輸送層60が正孔輸送性高分子であるポリ(Nービニルカルバゾール)からなる場合において、このポリ(Nービニルカルバゾール)の溶解度パラメタの可溶範囲外が、室温において8.8(cal/cm³)^{1/2}以下または10.1(cal/cm³)^{1/2}以上であることから、第2の溶媒として、その溶解度パラメタが、室温において8.8(cal/cm³)^{1/2}以下または10.1(cal/cm³)^{1/2}以上のどちらか1方を満たす溶媒を選択することが望ましい。

【0093】以下に、本発明における有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)を作成し、その素子へ所定の電圧を印加した時に測定された輝度と、電流密度と、発光色を示す。

[0094]

【実施例】[実施例1]電子輸送剤として、化学式 【化31】

で示される化合物6mgを、正孔輸送性高分子としてポリ(Nービニルカルバゾール)6mgを、ジクロロエタン1mlに溶解して得られた溶液を作成した。この溶液を使用して、陽極として作用する市販のITO基板(旭ガラス製、20Ω/□)上に、スピンコート法によって厚さ100nmの発光層を形成した。次に、真空蒸着装置を用いて、発光層上に陰極を形成した。この時、圧力10-3Pa中でMgとAgを元素比10:1の割合で混合し、1nm/secの速度で200nm蒸着した。上記に示される製造法によって作成された有機EL素子の輝度は、素子への印加電圧が20Vの時に、輝度が1000cd/m²であった。また、この時の電流密度は90mA/cm²であった。また、この時の発光色は緑色を示した。

【0095】[比較例1]電子輸送剤として、化学式 【化32】

で示される化合物6mgを、正孔輸送制高分子としてポリ(Nビニルカルバゾール)6mgを、ジクロロエタン1ml中に溶解した溶液を作成しようと試みたが、[化32]で示される化合物は溶解しなかった。

【0096】 [実施例2~6]電子輸送剤として、化学式 [化1]で示される化合物のうち、-OCH3からなる官能基が、R1~R4またはR6それぞれに配置されて得られる各化合物を用いた以外は、 [実施例1]に示される作成方法と同様にして、有機EL素子を作成した。下記に示す [表1]に、電子輸送剤に用いられた、化学式 [化1]で示される化合物における、-OCH3からなる官能基の位置と、素子への印加電圧が20Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発

光色はすべて緑色を示した。

【0097】ここで、化学式 [化1]で示される化合物のうち、実施例2ではR1に-OCH $_3$ からなる官能基が設けられ、実施例3ではR2に-OCH $_3$ からなる官能基が設けられ、実施例4ではR3に-OCH $_3$ からなる官能基が設けられ、実施例5ではR4に-OCH $_3$ からなる官能基が設けられ、実施例6ではR4に-OCH $_3$ からなる官能基が設けられ、実施例6ではR6に-OCH $_3$ からなる官能基が設けられた化合物からなる電子輸送剤を用いて得られる有機EL素子において、素子への印加電圧が20Vの時に得られる輝度と電流密度との対応を示す。

【表1】

	官能基の位置	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 2	R1	700	100
実施例 3	R2	900	90
実施例 4	R3	950	105
実施例 5	R4	1100	90
実施例 6	R6	800	95

【0098】[実施例 $7\sim12$ 、比較例2] [実施例 1] において用いられた、 $-OCH_3$ からなる官能基の代わりに、 $-OC_nH_{2n+1}$ (nは自然数)で表される官能基からなる化合物を用いた以外は、[実施例1] に示される作成方法と同様に作成した。下記に示す[表 2] に、電子輸送剤に用いられた化合物の官能基と、印加電圧20 Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0099】ここで、電子輸送剤に用いられた化合物を構成する、 $-OC_nH_{2n+1}$ (nは自然数)で表される官能基のうち、実施例7ではn=2の時の化合物、実施例8ではn=4の時の化合物、実施例9ではn=6の時の化合物、実施例10ではn=8の時の化合物、実施例12ではn=12の時の化合物、実施例2ではn=22の時の化合物を用いて作成された有機EL素子において、素子への印加電圧が20Vの時に得られる輝度と電流密度との対応を示す。

【表2】

	官能基nの数	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 7	2	1050	110
実施例 8	4	900	85
実施例 9	6	850	87
実施例 10	8	900	85
実施例 11	10	870	80
実施例 12	12	850	83
比較例 2	22	700	60

【0100】[実施例 $13\sim19$][実施例1]において用いられた-0CH $_3$ からなる官能基の代わりに、-C $_n$ H $_2$ $_{n+1}$ (nは自然数)で表される官能基を用いた各化合物を用いた以外は、[実施例1]に示される作成方法と同様に作成した。下記に示す[表3]に、電子

輸送剤に用いられた化合物の官能基と、印加電圧20Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0101】ここで、電子輸送剤に用いられた化合物を構成する、 $-C_nH_{2n+1}$ (nは自然数)で表される官能基のうち、実施例13はn=1の時の化合物、実施例14はn=2の時の化合物、実施例15はn=4の時の化合物、実施例16はn=6の時の化合物、実施例17はn=8の時の化合物、実施例18はn=10の時の化合物、実施例19はn=12の時の化合物を用いた時に、印加電圧2000時の輝度と電流密度との対応を示す。

【表3】

	官能基内の数	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 13	1	1210	110
実施例 14	2	1150	100
実施例 15	4	950	90
実施例 16	6	850	92
実施例 17	8	870	93
実施例 18	10	830	85
実施例 19	12	810	80

【0102】[実施例20~31] [実施例1] において用いられた-OCH3からなる官能基の代わりに、以下の表において表される官能基を用いた各化合物を用いた以外は、[実施例1]に示される作成方法と同様に作成した。下記に示す[表4]に、電子輸送剤に用いられた化合物の官能基と、印加電圧20Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0103】ここで、電子輸送剤に用いられた化合物を構成する官能基に関して、実施例20は $-CH=CH_2$ 、実施例21は $-C_2H_3=CH_2$ 、実施例22は $-C_3H=CH_2$ 、実施例23は $-C_2H_3=CH_2$ 、実施例25は $-CH=CH-CH=CH_2$ 、実施例26は $-OCH=CH-CH=CH_2$ 、実施例26は $-OCH=CH_2$ 、実施例27は $-OC_2H_3=CH_2$ 、実施例28は $-OC_3H=CH_2$ 、実施例29は $-OC_2H_3=C_2H_4$ 、実施例30は $-OC_6H_5-CH_3$ 、実施例31は $-OCH=CH-CH=CH_2$ の時の化合物を用いた時に、印加電圧20Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。

【表4】

	1901		
	官能基	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 20	-CH=CH ₂	1300	1300
実施例 21	-C ₂ H ₃ =CH ₂	1310	1200
実施例 22	-C ₃ H=CH ₂	1280	1150
実施例 23	-C₂H₃=C₂H₄	1250	1200
実施例 24	-C ₆ H ₅ -CH ₃	1320	1300
実施例 25	-CH=CH-CH=CH,	1280	1250
実施例 26	-OCH=CH ₂	1250	1280
実施例 27	-OC ₂ H ₃ =CH ₂	1260	1200
実施例 28	-OC ₃ H=CH ₂	1230	1200
実施例 29	-OC ₂ H ₃ =C ₂ H ₄	1200	1250
実施例 30	-OC ₆ H ₅ -CH ₃	1270	1200
実施例 31	-OCH=CH-CH=CH2	1230	1300

【0104】 [実施例32~40] [実施例1] において用いられた溶液において、以下に示す蛍光物質をさらに0.1mg溶解して得られた溶液を用いる以外は、

[実施例1]に示される作成方法と同様にして、有機EL素子を作成した。この時、発光層中にさらに蛍光物質を含む構成となる。下記に示す[表5]に、溶液に溶解した蛍光物質であるドープ剤と、印加電圧20Vの時の輝度と電流密度と発光色との対応を示す。

【0105】ここで、蛍光物質であるドープ剤に関して、実施例32ではクマリン6を、実施例33ではルブ

レンを、実施例33ではナイルレッドを、実施例35ではDCMを、実施例36では化学式[化25]で表される化合物を、実施例37では化学式[化26]で表される化合物を、実施例38では化学式[化27]で表される化合物を、実施例39では化学式[化28]で表される化合物を、実施例40では化学式[化29]で表される化合物を用いた時に、印加電圧20Vの時の輝度と電流密度と発光色との対応を示す。

【表5】

	ドープ剤	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)	発光色
実施例 32	クマリン6	3000	90	緑
実施例 33	ルブレン	3400	85	黄
実施例 34	ナイルレッド	2000	87	オレンジ
実施例 35	DCM	1500	85	オレンジ
実施例 36	化25	1200	88	オレンジ
実施例 37	化26	1100	87	オレンジ
実施例 38	化27	1200	84	オレンジ
実施例 39	化28	1300	80	赤
実施例 40	化29	1200	83	赤

【0106】「実施例41~54]電子輸送剤として、化学式「化1]で示される化合物のうち、中心原子であるA1が以下に示す金属原子からなる各化合物を用いた以外は、「実施例1」に示される作成方法と同様にして、有機巨上素子を作成した。下記に示す[表6]に、中心元素の種類と、印加電圧20Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。

【0107】ここで、中心原子に関して、実施例41ではLie、実施例42ではNae、実施例43ではKe、実施例44ではRbe、実施例45ではBeを、実施例46ではMse、実施例47ではCae、実施例48ではBe、実施例49ではGae、実施例50ではEue、実施例51ではYbe、実施例52ではLue、実施例53ではZne、実施例54ではCde用いた時に、印加電EE20Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。

【表6】

	中心金属	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 41	Li	1000	61
実施例 42	Na	800	54
実施例 43	к	700	51
実施例 44	Rb	500	· 48
実施例 45	Be	1200	. 72
実施例 46	Mg	400	61
実施例 47	Ca	300	53
実施例 48	В	200	49
実施例 49	Ga	300	46
実施例 50	Eu	800	62
実施例 51	ΥЬ	400	48
実施例 52	Lu	300	45
実施例 53	Zn	600	50
実施例 54	Cd	400	45

【0108】[実施例55~111]電子輸送剤として、一〇〇円3からなる官能基が、化学式 [化1]で示される化合物のうち、R1~R4またはR6のうち、下記に定められた位置に付けられた各化合物を用いた以外は、[実施例1]に示される作成方法と同様にして、有機EL素子を作成した。下記に示す [表7]、[表8]に、電子輸送剤に用いられた化合物の官能基の位置と、印加電圧20Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0109】ここで、実施例55は一〇〇円。からなる 官能基がR1, R2に、実施例56は-OCH₃からな る官能基がR1, R3に、実施例57は-OCH₃から なる官能基がR1, R4に、実施例58は-OCH3か らなる官能基がR1、R5に、実施例59は-OCH3 からなる官能基がR1,R6に、実施例60は-OCH 3 からなる官能基がR2,R3に、実施例61は−OC Haからなる官能基がR2, R4に、実施例62は-O CH3からなる官能基がR2, R5に、実施例63は一 OCHaからなる官能基がR2, R6に、実施例64は -OCH。からなる官能基がR3、R4に、実施例65 は一OCH3からなる官能基がR3,R5に、実施例6 6は-OCHaからなる官能基がR3, R6に、実施例 67は-OCHaからなる官能基がR4、R5に、実施 例68は-OCH₃からなる官能基がR4, R6に、実 施例69は-OCH₃からなる官能基がR5, R6に、 実施例70は-OCH₃からなる官能基がR1、R2、 R3に、実施例71は-OCH3からなる官能基がR 1, R2, R4に、実施例72は-OCH₃からなる官 能基がR1、R2、R5に、実施例73は-OCH3か らなる官能基がR1、R2、R6に、実施例74は-O CH₃ からなる官能基がR1, R3, R4に、実施例7 5は-OCHaからなる官能基がR1,R3,R5に、 実施例76は-OCH₃からなる官能基がR1,R3, R6に、実施例77は-OCH3からなる官能基がR 1, R4, R5に、実施例78は-OCH₃からなる官 能基がR1, R4, R6に、実施例79は-OCH3か らなる官能基がR1, R5, R6に、実施例80は-O CH₃ からなる官能基がR2, R3, R4に、実施例8 1は-OCH₃からなる官能基がR2,R3,R5に、 実施例82は-OCH3からなる官能基がR2、R3, R6に、実施例83は-OCH3からなる官能基がR 2、R4、R5に、実施例84は-OCH₃からなる官 能基がR2. R4, R6に、実施例85は-OCH3か らなる官能基がR2, R5, R6に、実施例86は-O CH₃ からなる官能基がR3, R4, R5に、実施例8 7は-OCH₃からなる官能基がR3,R4,R6に、 実施例88は-OCH3からなる官能基がR3、R5, R6に、実施例89は-OCH。からなる官能基がR 4, R5, R6に、実施例90は-OCH₃ からなる官

能基がR1、R2、R3、R4に、実施例91は-OC H₃ からなる官能基がR1, R2, R3, R5に、実施 例92は-OCH₃からなる官能基がR1,R2.R 3, R6に、実施例93は-OCH3からなる官能基が R1, R2, R4, R5に、実施例94は-OCH₃か らなる官能基がR1, R2, R4, R6に、実施例95 は-OCH₃ からなる官能基がR1, R2, R5, R6 に、実施例96は $-OCH_3$ からなる官能基がR1, R3, R4, R5に、実施例97は-OCH₃からなる官 能基がR1,R3,R4,R6に、実施例98は-OC H₃ からなる官能基がR1、R3、R5、R6に、実施 例99は-OCH₃からなる官能基がR1,R4,R 5, R6に、実施例100は-OCH₃からなる官能基 がR2, R3, R4, R5に、実施例101は-OCH ョからなる官能基がR2、R3、R4、R6に、実施例 102は-OCH₃からなる官能基がR2, R3, R 5, R6に、実施例103は-OCH3からなる官能基 がR 2 , R 4 , R 5 , R 6 に 、実施例 1 0 4 はーOCH 3 からなる官能基がR3, R4, R5, R6に、実施例 105は-OCH₃からなる官能基がR1, R2. R 3, R4, R5に、実施例106は-OCH₃ からなる 官能基がR1, R2, R3, R4, R6に、実施例10 7は-OCH₃からなる官能基がR1, R2, R3, R 5. R 6 に、実施例 1 0 8 は – O C H $_{s}$ からなる官能基 がR1, R2, R4, R5, R6に、実施例109は-OCH₃ からなる官能基がR1, R3, R4, R5, R 6に、実施例110は-OC H_3 からなる官能基がR 2, R3, R4, R5, R6に、実施例111は-OC H₃ からなる官能基がR1, R2, R3, R4, R5, R6に付けられた化合物を用いた時に、印加電圧20V の時の輝度と電流密度との対応を示す。

【表7】

	置換器位置	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 55	R1, R2	950	98
実施例 56	R1, R3	980	100
実施例 57	R1, R4	1050	103
実施例 58	R1, R5	1030	. 102
実施例 59	R1, R6	1020	105
実施例 60	R2, R3	980	110
実施例 61	R2, R4	1150	105
実施例 62	R2, R5	1230	110
実施例 63	R2, R6	1030	104
実施例 64	R3, R4	1000	94
実施例 65	R3. R5	1300	110
実施例 66	R3. R6	1100	105
実施例 67	R4, R5	1050	105
実施例 68	R4, R6	980	100
実施例 69	R5, R6	890	90
実施例 70	R1, R2, R3	830	87
実施例 71	R1, R2, R4	870	93
実施例 72	R1, R2, R5	890	92
実施例 73	R1, R2, R6	850	85
実施例 74	R1, R3, R4	900	93
実施例 75	R1, R3, R5	910	92
実施例 76	R1, R3, R6	890	90
実施例 77	R1, R4, R5	910	92
実施例 78	R1, R4, R6	1040	102
実施例 79	R1, R5, R6	980	95
実施例 80	R2, R3, R4	1100	105
実施例 81	R2, R3, R5	1040	100
実施例 82	R2, R3, R6	950	93
実施例 83	R2, R4, R5	980	90
実施例 84	R2, R4, R6	940	87
実施例 85	R2, R5, R6	960	85
実施例 86	R3, R4, R5	1100	107
実施例 87	R3, R4, R6	1050	100
実施例 88	R3, R5, R6	980	98
実施例 89	R4, R5, R6	940	95

【表8】

	責換器位置	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 90	R1, R2, R3, R4	850	80
実施例 91	R1, R2, R3, R5	870	85
実施例 92	R1, R2, R3, R6	890	88
実施例 93	R1, R2, R4, R5	880	80
実施例 94	R1, R2, R4, R6	890	83
実施例 95	R1, R2, R5, R6	930	85
実施例 96	R1, R3, R4, R5	900	80
実施例 97	R1, R3, R4, R6	950	83
実施例 98	R1, R3, R5, R6	970	84
実施例 99	R1. R4, R5, R6	960	83
実施例 100	R2, R3, R4, R5	1000	90
実施例 101	R2, R3, R4, R6	980	8.8
実施例 102	R2, R3, R5, R6	960	85
実施例 103	R2, R4, R5, R6	980	88
実施例 104	R3, R4, R5, R6	960	84
実施例 105	R1, R2, R3. R4, R5	800	75
実施例 106	R1, R2, R3, R4, R6	810	74
実施例 107	R1, R2, R3, R5, R6	830	. 73
実施例 108	R1, R2, R4, R5, R6	840	74
実施例 109	R1, R3, R4, R5, R6	830	71
実施例 110	R2, R3, R4, R5, R6	820	. 73
実施例 111	R1, R2, R3, R4, R5, R6	780	70

【0110】[実施例1]12~120] [実施例1]に おいて用いられている正孔輸送性高分子の代わりに、以下に示す正孔輸送剤を用いる以外は、[実施例1]に示される作成方法と同様にして、有機EL素子を作成した。下記に示す[表9]に、正孔輸送剤と、印加電圧20Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0111】ここで、実施例112は正孔輸送剤が化学式[化15]で表される化合物を、実施例113は正孔輸送剤が化学式[化16]で表される化合物を、実施例114は正孔輸送剤が化学式[化17]で表される化合物を、実施例115は正孔輸送剤が化学式[化18]で表される化合物を、実施例116は正孔輸送剤が化学式[化19]で表される化合物を、実施例117は正孔輸送剤が化学式[化20]で表される化合物を、実施例118は正孔輸送剤が化学式[化21]で表される化合物を、実施例119は正孔輸送剤が化学式[化22]で表される化合物を、実施例120は正孔輸送剤が化学式[化22]で表される化合物を、実施例120は正孔輸送剤が化学式[化23]で表される化合物を用いた時に、印加電圧20Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。【表9】

	正孔输送剂	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 112	化15	950	98
実施例 113	化16	980	100
実施例 114	化17	1050	103
実施例 115	化18	1030	102
実施例 116	化19	1020	105
実施例 117	化20	980	110
実施例 118	化21	1150	105
実施例 119	化22	1230	110
実施例 120	化23	1030	104

【0112】 [実施例121] 正孔輸送性高分子とし て、ポリ(Nビニルカルバゾール)7mgをジクロロエ タン1m1に溶解し、正孔輸送層用の溶液を作成した。 更に、電子輸送剤として、化学式[化31]で表される 化合物を4mg、バインダ高分子としてポリスチレン4 mgを、エチルベンゼン1ml中に溶解させ、電子輸送 層用の溶液を作成した。陽極として作用する市販のIT ○基板(旭ガラス製20公/□)上に、正孔輸送層用の 溶液を用いて、スピンコート法により、厚さ50nmの 正孔輸送層を形成した。次に、その正孔輸送層上に、電 子輸送層用の溶液を用いて、スピンコート法により、厚 さ50nmの電子輸送発光層を形成した。次に、真空蒸 着装置を用いて、電子輸送層上に陰極を形成した。この 時、圧力10-3 Pa中でMgとAgを元素比10:1 の割合で混合し、1 n m/s e c の速度で200 n m 蒸 着した。上記に示される製造法によって作成された有機 EL素子の輝度は、印加電圧15Vの時、輝度900c d/m²であった。また、この時の電流密度は10mA /cm²であった。また、この時の発光色は緑色を示し

た。

【0113】[実施例122~126][実施例121]で用いられた電子輸送剤の代わりに、-OCH₃からなる官能基が、[化1]で示される化合物のうち、R1~R4またはR6それぞれに付いた各化合物を電子輸送剤として用いた以外は、[実施例121]に示される作成方法と同様にして、有機EL素子を作成した。下記に示す「表10]に、電子輸送剤に用いられた化合物の官能基の位置と、素子への印加電圧が15Vの時における輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0114】ここで、実施例122は $-OCH_3$ からなる官能基がR1に、実施例123は $-OCH_3$ からなる官能基がR2に、実施例124は $-OCH_3$ からなる官能基がR3に、実施例125は $-OCH_3$ からなる官能基がR4に、実施例126は $-OCH_3$ からなる官能基がR4に、実施例126は $-OCH_3$ からなる官能基がR6に付いた化合物からなる電子輸送剤を用いた時に、印加電圧15Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。

【表10】

	官能基の位置	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 122	R1	658	
実施例 123	R2	845	9
実施例 124	R3	362	10
実施例 125	R4	1005	9
実施例 126	R6	738	9

【0115】 [実施例127~132、比較例3] [実施例121] において用いられた $-OCH_3$ からなる官能基の代わりに、 $-OC_nH_{2n+1}$ (nは自然数)で表される官能基を用いた各化合物を用いた以外は、[実施例121] に示される作成方法と同様に作成した。下記に示す [表11] に、電子輸送剤に用いられた化合物の官能基と、印加電圧15Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0116】ここで、電子輸送剤に用いられた化合物を構成する、 $-OC_nH_{2n+1}$ (nは自然数)で表される官能基のうち、実施例127はn=2の時の化合物、実施例128はn=4の時の化合物、実施例129はn=6の時の化合物、実施例130はn=8の時の化合物、実施例131はn=10の時の化合物、実施例132はn=12の時の化合物、比較例3はn=22の時の化合物を用いた時に、印加電圧15Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。

【表11】

	官能基内の数	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 127	2	952	11
実施例 128	4	815	8
実施例 129	6	795	8
実施例 130	8	849	8
実施例 131	10	793	8
実施例 132	12	798	8
比較例3	22	650	6

【0117】[実施例 $133\sim139$][実施例121]において用いられた $-OCH_3$ からなる官能基の代わりに、 $-C_nH_{2n+1}$ (nは自然数)で表される官能基を用いた各化合物を用いた以外は、[実施例121]に示される作成方法と同様に作成した。下記に示す[表12]に、電子輸送剤に用いられた化合物の官能基と、印加電圧15Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0118】ここで、電子輸送剤に用いられた化合物を構成する、-CnH2n+1(nは自然数)で表される官能基のうち、実施例133はn=1の時の化合物、実施例134はn=2の時の化合物、実施例135はn=4の時の化合物、実施例136はn=6の時の化合物、実施例137はn=8の時の化合物、実施例137はn=8の時の化合物、実施例137はn=8の時の化合物、実施例139はn=12の時の化合物を用いた時に、印加電圧15Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。

【表12】

	官能基nの数	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 133	1	1060	10
実施例 134	2	1047	10
実施例 135	4	866	9
実施例 136	6	783	9
実施例 137	8	818	9
実施例 138	• 10	767	8
実施例 139	12	731	. 8

【0119】[実施例140~151][実施例121]において用いられた-OCH3からなる官能基の代わりに、以下の表において表される官能基を用いた各化合物を用いた以外は、[実施例121]に示される作成方法と同様に作成した。下記に示す[表13]に、電子輸送剤に用いられた化合物の官能基と、印加電圧15Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

 $OC_2H_3=C_2H_4$ 、実施例150は $-OC_6H_5-CH_3$ 、実施例151は $-OCH=CH-CH=CH_2$ の時の化合物を用いた時に、印加電圧15Vの時の輝度

と電流密度との対応を示す。 【表13】

	官能基	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 140	-CH=CH₂	1222	132
実施例 141	-C₂H₃=CH₂	1226	120
実施例 142	-C₃H=CH₂	1199	119
実施例 143	-C ₂ H ₃ =C ₂ H ₄	1139	121
実施例 144	-C ₆ H ₅ -CH ₃	1224	131
実施例 145	-CH=CH-CH=CH₂	1201	128
実施例 146	-OCH=CH2	1141	129
実施例 147	-OC ₂ H ₃ =CH ₂	1164	122
実施例 148	-OC₃H=CH₂	1141	121
実施例 149	-OC ₂ H ₃ =C ₂ H ₄	1114	131
実施例 150	-OC ₆ H ₅ -CH ₃	1191	123
実施例 151	-OCH=CH-CH=CH2	1154	131

【0121】[実施例152~160] [実施例12 1]において用いられた正孔輸送層用の溶液と電子輸送 層用の溶液において、以下に示す蛍光物質をさらに0. 1mg溶解して得られた溶液を用いる以外は、[実施例 121」に示される作成方法と同様にして、有機EL素 子を作成した。この時、発光層中にさらに蛍光物質を含む構成となる。下記に示す[表14]に、溶液に溶解した蛍光物質であるドープ剤と、印加電圧15Vの時の輝度と電流密度と発光色との対応を示す。

【0122】ここで、蛍光物質であるドープ剤に関して、実施例152ではクマリン6を、実施例153では

ルブレンを、実施例154ではナイルレッドを、実施例155ではDCMを、実施例156では化学式[化25]で表される化合物を、実施例157では化学式[化26]で表される化合物を、実施例158では化学式[化27]で表される化合物を、実施例159では化学式[化28]で表される化合物を、実施例160では化学式[化29]で表される化合物を用いた時に、印加電圧15Vの時の輝度と電流密度と発光色との対応を示す。

【表14】

	ドープ剤	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)	発光色
実施例 152	クマリン6	2800	9	緑
実施例 153	ルブレン	3300	8	黄
実施例 154	ナイルレッド	1900	9	オレンジ
実施例 155	DCM	1400	8	オレンジ
実施例 156	化25	1000	9	オレンジ
実施例 157	化26	1000	9	オレンジ
実施例 158	化27	1050	8	オレンジ
実施例 159	化28	1100	8	赤
実施例 160	化29	1000	8	赤

【0123】[実施例161~174]電子輸送剤として、化学式[化1]で示される化合物のうち、中心原子であるA1が以下に示す金属原子からなる各化合物を用いた以外は、[実施例121]に示される作成方法と同様にして、有機EL素子を作成した。下記に示す[表15]に、中心原子の種類と、印加電圧15Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。

【0124】ここで、中心原子に関して、実施例161ではLiを、実施例162ではNaを、実施例163ではKを、実施例164ではRbを、実施例165ではBeを、実施例166ではMgを、実施例167ではCaを、実施例168ではBを、実施例169ではGaを、実施例170ではEuを、実施例171ではYbを、実施例172ではLuを、実施例173では2nを、実施

例174ではCdを用いた時に、印加電圧15Vの時の 輝度と電流密度との対応を示す。

【表15】

	中心金属	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 161	Li	934	6
実施例 162	Na	741	5
実施例 163	к	631	5
実施例 164	Rb	470	4
実施例 165	Be	1115	. 7
実施例 166	Mg	363	6
実施例 167	Ca	275	5
実施例 168	В	183	5
実施例 169	Ga	281	4
実施例 170	Eu	751	6
実施例 171	ΥЬ	365	4
実施例 172	Lu	274	4
実施例 173	Zn	545	5
実施例 174	Са	370	4

【0125】[実施例175~231]電子輸送剤として、一〇СH₃からなる官能基が、化学式[化1]で示される化合物のうち、R1~R4またはR6のうち、下記に定められた位置に付けられた各化合物を用いた以外は、[実施例121]に示される作成方法と同様にして、有機EL素子を作成した。下記に示す[表16]、[表17]に、電子輸送剤に用いられた化合物の官能基の位置と、印加電圧15Vの時の輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0126】ここで、実施例175は-OCH3からな る官能基がR1, R2に、実施例176は-OCH₃か らなる官能基がR1, R3に、実施例177は-OCH 3 からなる官能基がR1, R4に、実施例178は-O CH3 からなる官能基がR1, R5に、実施例179は -OCH₃ からなる官能基がR1, R6に、実施例18 0は-OCH₃からなる官能基がR2, R3に、実施例 181は-OCH₃からなる官能基がR2, R4に、実 施例182は-OCH₃からなる官能基がR2, R5 に、実施例183は-OCH3からなる官能基がR2, R6に、実施例184は-OCH3からなる官能基がR 3, R4に、実施例185は-OCH3 からなる官能基 がR3, R5に、実施例186は-OCH3 からなる官 能基がR3、R6に、実施例187は-OCH3からな る官能基がR4, R5に、実施例188は-OCH_aか らなる官能基がR4、R6に、実施例189は-OCH 3からなる官能基がR5, R6に、実施例190は-O CH₃ からなる官能基がR1, R2, R3に、実施例1 91は-OCH₉からなる官能基がR1,R2,R4 に、実施例192は-OCH3からなる官能基がR1. R2、R5に、実施例193は-OCH。からなる官能 基がR1, R2, R6に、実施例194は-OCH3か らなる官能基がR1.R3,R4に、実施例195は-OCH₃ からなる官能基がR1, R3, R5に、実施例 196は-OCH₃ からなる官能基がR1, R3, R6

に、実施例197は-OCH₃からなる官能基がR1, R4. F5に、実施例198は-OCH。からなる官能 基がR1, R4, R6に、実施例199は-OCH₃か らなる官能基がR1, R5, R6に、実施例200は-OCH₃ からなる官能基がR2、R3、R4に、実施例 201は-OCH₃からなる官能基がR2、R3、R5 に、実施例202は $-OCH_3$ からなる官能基がR2, R3. R6に、実施例203は-OCH3 からなる官能 基がR2、R4、R5に、実施例204は-OCH₃ か らなる官能基がR2, R4, R6に、実施例205は-OCH₃ からなる官能基がR2, R5, R6に、実施例 206は-OCH₃からなる官能基がR3、R4、R5 に、実施例207は-OCH₃からなる官能基がR3, R4、R6に、実施例208は一〇CHaからなる官能 基がR3, R5, R6に、実施例209は-OCH₃か らなる官能基がR4, R5, R6に、実施例210は-OCH₃ からなる官能基がR1, R2, R3, R4に、 実施例211は-OCH₃からなる官能基がR1,R 2, R3, R5に、実施例212は-OCH3からなる 官能基がR1, R2, R3, R6に、実施例213は-OCH₃ からなる官能基がR1, R2, R4, R5に、 実施例214は一〇CHョからなる官能基がR1,R 2, R4, R6に、実施例215は-OCH₃からなる 官能基がR1,R2,R5,R6に、実施例216は-OCH₃ からなる官能基がR1、R3, R4, R5に、 実施例217は-OCH3からなる官能基がR1, R 3、R4、R6に、実施例218は-OCH₃からなる 官能基がR1, R3, R5, R6に、実施例219は-OCH₃ からなる官能基がR1, R4, R5, R6に、 実施例220は-OCH₃ からなる官能基がR2, R 3、R4、R5に、実施例221は-OCH3 からなる 官能基がR2, R3, R4, R6に、実施例222は-OCH₃ からなる官能基がR2, R3, R5, R6に、 実施例223は-OCH₃からなる官能基がR2,R 4, R5, R6に、実施例224は-OCH₃からなる 官能基がR3, R4, R5, R6に、実施例225は一 OCH₂からなる官能基がR1, R2, R3, R4, R 5に、実施例226は-OCH3からなる官能基がR 1, R2, R3, R4, R6に、実施例227は-OC H₃ からなる官能基がR1, R2, R3, R5, R6 に、実施例228は-OCH3 からなる官能基がR1, R2, R4, R5, R6に、実施例229は-OCH3 からなる官能基がR1, R3, R4, R5, R6に、実 施例230は-OCH3からなる官能基がR2, R3, R4, R5, R6に、実施例231は-OCH₃からな る官能基がR1、R2, R3, R4, R5, R6に付け られた化合物を用いた時に、印加電圧15Vの時の輝度 と電流密度との対応を示す。

【表16】

	置換器位置	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 175	R1, R2	820	9
実施例 176	R1, R3	827	9
実施例 177	R1, R4	1051	17
実施例 178	R1, R5	838	9
実施例 179	R1, R6	1050	11
実施例 180	R2, R3	837	9
実施例 181	R2, R4	1039	11
実施例 182	R2, R5	902	10
実施例 183	R2, R6	1007	11
実施例 184	R3, R4	853	.9
実施例 185	R3, R5	923	10
実施例 186	R3, R6	867	_ 9
実施例 187	R4, R5	963	10
実施例 188	R4, R6	1065	
実施例 189	R5, R6	889	9
実施例 190	R1, R2, R3	1097	11
実施例 191	R1, R2, R4	1080	11
実施例 192	R1, R2, R5	1075	11
実施例 193	R1, R2, R6	1168	12
実施例 194	R1, R3, R4	1181	12
実施例 195	R1, R3, R5	980	10
実施例 196	R1, R3, R6	1000	11
実施例 197	R1, R4, R5	1080	11
実施例 198	R1, R4, R6	939	10
実施例 199	R1, R5, R6	1046	11
実施例 200	R2, R3, R4	952	10
実施例 201	R2, R3, R5	955	10
実施例 202	R2, R3, R6	1118	12
実施例 203	R2, R4, R5	1127	12
実施例 204	R2, R4, R6	1183	12
実施例 205	R2, R5, R6	942	10
実施例 206	R3, R4, R5	921	10
実施例 207	R3, R4, R6	961	10
実施例 208	R3, R5, R6	1164	12
実施例 209	R4. R5, R6	923	10

【表17】

用の溶液を作成する代わりに、以下に示される正孔輸送剤を用いて正孔輸送層用の溶液を作成すること以外は、[実施例261]に示される作成方法と同様にして、有機EL素子を作成した。下記に示す[表21]に、用いられた正孔輸送剤と、素子への印加電圧が15Vの時における輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0135】ここで、実施例262では正孔輸送剤とし

て化学式 [化6]で示される化合物を用い、実施例263では正孔輸送剤として化学式 [化7]で示される化合物を用い、実施例264では正孔輸送剤として化学式 [化8]で示される化合物を用いて得られた有機EL素子に対して、素子への印加電圧が15Vの時における輝度と電流密度との対応を示す。

【表21】

	正孔輸送剤	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 262	化6	750	
実施例 263	化7	720	
実施例 264	化8	850	12
	Cetal Contac		

【0136】[実施例265~274][実施例26 1]で用いられたバインダ高分子を用いて電子輸送層用 の溶液を作成する代わりに、以下に示されるバインダ高 分子を用いて電子輸送層用の溶液を作成すること以外 は、[実施例261]に示される作成方法と同様にし て、有機EL素子を作成した。下記に示す[表21] に、用いられたバインダ高分子と、素子への印加電圧が 15Vの時における輝度と電流密度との対応を示す。ま た、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0137】ここで、実施例265ではバインダ高分子としてポリ(2-ビニルナフタレン)を用い、実施例266ではバインダ高分子としてポリ(メチルメタクリレート)を用い、実施例267ではバインダ高分子としてポリ(ビニルアセテート)を用い、実施例268ではバ

インダ高分子としてポリ(2ービニルピリジンーcoースチレン)を用い、実施例269ではバインダ高分子としてポリアセナフタレンを用い、実施例270ではバインダ高分子としてポリカーボネートを用い、実施例271ではバインダ高分子としてポリ(ベンジルメチルメタクリレート)を用い、実施例272ではバインダ高分子としてポリビニルドルエンを用い、実施例273ではバインダ高分子としてポリビニルを用い、実施例274ではバインダ高分子としてポリビニルを用い、実施例274ではバインダ高分子としてポリ(9ービニルフェナントレン)を用い用いて得られた有機EL素子に対して、素子への印加電圧が15Vの時における輝度と電流密度との対応を示す。

【表22】

	パインダ高分子	輝度 (cd/m²)	電流密度 (mA/cm²)
実施例 265	ボリ(2ービニルナフタレン)	981	14
実施例 266	ポリ(メチルメタクリレート)	730	10
実施例 267	ポリ〈ビニルアセテート〉	853	12
実施例 268	ポリ(2ービニルビリジンーcoースチレン)	775	11
実施例 269	ポリアセナフタレン	1061	• 15
実施例 270	ポリカーボネート	779	11
実施例 271	ボリ(ベンジルメチルメタクリレート)	954	13
実施例 272	ポリビニルトルエン	1020	14
	ポリビニルビフェニル	643	9
実施例 274	ボリ(9ービニルフェナントレン)	1136	16

【0138】 [実施例275~293] [実施例26 1]で用いられた、ジクロロエタンからなる正孔輸送層 用の溶媒の代わりに、以下に示される溶媒を用いて正孔 輸送層用の溶液を作成すること以外は、 [実施例26 1]に示される作成方法と同様にして、有機EL素子を 作成した。下記に示す [表23]に、用いられた正孔輸

作成した。下記に示す [表23] に、用いられた正孔輸送剤と、素子への印加電圧が15Vの時における輝度と電流密度との対応を示す。また、この時の発光色はすべて緑色を示した。

【0139】ここで、実施例275では溶媒としてモノクロロベンゼンを用い、実施例274では溶媒としてトリクロロメタンを用い、実施例277では溶媒としてパラジクロロベンゼンを用い、実施例278では溶媒とし

て酢酸エチルを用い、実施例279では溶媒としてフルオロベンゼンを用い、実施例280では溶媒として1.1.2.2ーテトラクロロエタンを用い、実施例281では溶媒としてオルトクロロトルエンを用い、実施例282では溶媒として1.2ージクロロプロパンを用い、実施例283では溶媒としてプロピルアミンを用い、実施例284では溶媒としてベンゼンを用い、実施例285では溶媒として酢酸メチルを用い、実施例286では溶媒として1.2.3ートリクロロプロパンを用い、実施例287では溶媒としてアセトンを用い、実施例288では溶媒としてアセトンを用い、実施例288では溶媒としてスチレンを用い、実施例289では溶媒としてメタクレゾールを用い、実施例290では溶媒としてメタクレゾールを用い、実施例290では溶媒として1.1.2ートリクロロエタンを用い、実施例2

91では溶媒として1-クロロナフタレンを用い、実施 例292では溶媒としてジクロロメタンを用い、実施例 293では溶媒としてジオキサンを用いて得られた有機 E L素子に対して、素子への印加電圧が15 Vの時における輝度と電流密度との対応を示す。

【表23】

	溶媒	輝度(cd/m²)	電流密度(mA/cm²)
実施例 275	モノクロロベンゼン	700	. 12
実施例 276	トリクロロメタン	725	12
実施例 277	パラジクロロベンゼン	718	12
実施例 278	酢酸エチル	723	12
実施例 279	フルオロベンゼン	705	12
実施例 280	1,1,2,2-テトラクロロエタン	710	12
実施例 281	オルトクロロトルエン	732	12
実施例 282	1,2-ジクロロプロパン	703	12
実施例 283	プロピルアミン	728	12
実施例 284	ベンゼン	7 0 5	12
実施例 285	酢酸メチル	717	12
実施例 286	1,2.3-トリクロロプロパン	731	12
実施例 287	アセトン	702	12
実施例 288	スチレン	702	12
実施例 289	メタクレゾール	713	12
実施例 290	1,1,2-トリクロロエタン	705	12
実施例 291	1-クロロナフタレン	730	12
実施例 292	ジクロロメタン	720	12
実施例 293	ジオキサン	728	12

[0140]

【発明の効果】以上説明したように、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子によれば、化学式 [化1]で表される化合物を電子輸送性発光体として用いている。この化合物が高い輝度を持ち、また有機溶媒に可溶であることから、湿式法によって発光層を形成することが可能であり、高い生産効率で高い輝度を持つ高品質の有機エレクトロルミネッセンス素子を製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明における有機エレクトロルミネッセンス素子の第1の実施形態であって、図1(a)は発光層に正孔輸送剤と電子輸送性発光剤とを含む有機エレクトロルミネッセンス素子を、図1(b)は発光層に正孔輸送性高分子と電子輸送性発光剤とを含む有機エレクトロルミネッセンス素子を、図1(c)は発光層に正孔輸送剤と電子輸送性発光剤とバインダ高分子とを含む有機エレクトロルミネッセンス素子を示す。

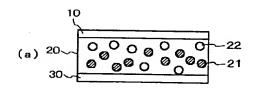
【図2】本発明における有機エレクトロルミネッセンス素子の第2の実施形態であって、図2(a)は正孔輸送層に正孔輸送剤を含み、電子輸送発光層に電子輸送性発光剤を含む有機エレクトロルミネッセンス素子を、図2(b)は正孔輸送層に正孔輸送性高分子を含み、電子輸送発光層に電子輸送性発光剤を含む有機エレクトロルミ

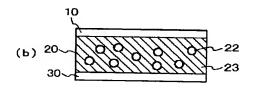
ネッセンス素子を、図2 (c)は正孔輸送層に正孔輸送 剤とバインダ高分子とを含み、電子輸送発光層に電子輸 送性発光剤とバインダ高分子とを含む有機エレクトロル ミネッセンス素子を、図2 (d)は正孔輸送層に正孔輸 送性高分子とバインダ高分子とを含み、電子輸送発光層 と電子輸送性発光剤とバインダ高分子5とを含む有機エ レクトロルミネッセンス素子を示す。

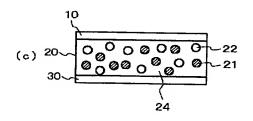
【符号の説明】

- 10 陰極
- 20 発光層
- 21 正孔輸送剤・
- 22 電子輸送性発光剤
- 23 正孔輸送性高分子
- 24 バインダ高分子
- 30 陽極
- 40 陰極
- 50 電子輸送発光層
- 51 電子輸送性発光剤
- 52 バインダ高分子
- 60 正孔輸送層
- 61 正孔輸送剤
- 62 正孔輸送性高分子
- 63 バインダ高分子
- 70 陽極

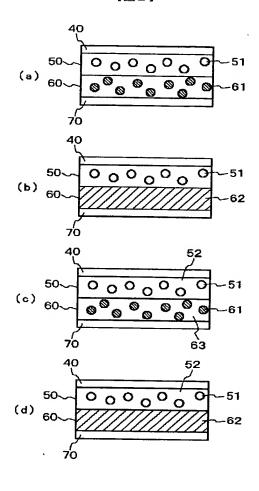
【図1】







【図2】



フロントページの続き

(51) Int. C1.7

識別記号

H O 5 B 33/22

(72)発明者 島田 陽一

埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホン ダエンジニアリング株式会社内

FΙ H 0 5 B 33/22

テーマコード(参考)

Fターム(参考) 3K007 AB00 AB02 AB03 AB18 CA01 CB01 CB03 DA00 DB03 EB00 FA01 FA03

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

De	fects in the images include but are not limited to the items checked:
	D BLACK BORDERS
	☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
	☐ FADED TEXT OR DRAWING
	☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
	☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
	☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
	☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
	☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
	☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
	О отупр

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)